

**THIS PAGE IS INSERTED BY OIPE SCANNING
AND IS NOT PART OF THE OFFICIAL RECORD**

Best Available Images

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

BLACK BORDERS

TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES

FADED TEXT

BLURRY OR ILLEGIBLE TEXT

SKEWED/SLANTED IMAGES

COLORED PHOTOS HAVE BEEN RENDERED INTO BLACK AND WHITE

VERY DARK BLACK AND WHITE PHOTOS

UNDECIPHERABLE GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE THE BEST AVAILABLE
COPY. AS RESCANNING *WILL NOT*
CORRECT IMAGES, PLEASE DO NOT
REPORT THE IMAGES TO THE
PROBLEM IMAGE BOX.**



PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number: **57073034 A**(43) Date of publication of application: **07 . 05 . 82**

(51) Int. Cl

C08L 23/10
C08K 3/34
C08L 9/06
C08L 23/06
C08L 23/16
C08L 53/02

(21) Application number: **55149054**(22) Date of filing: **24 . 10 . 80**(71) Applicant: **MITSUBISHI PETROCHEM CO LTD**

(72) Inventor: **SOBASHIMA YOSHIHIRO**
YUI HIROSHI
ICHIKAWA YUKIHIKO

(54) **TALC-CONTAINING PROPYLENE POLYMER COMPOSITION**

(57) Abstract:

PURPOSE: The titled composition that is made by adding a talc of specific particle size distribution along with an ethylene polymer of a specific density and a specific rubber component, thus having high-degree balance between the impact strength and the toughness and giving good-surface properties to moldings.

CONSTITUTION: The objective composition comprises (A) a crystalline propylene polymer, (B) an ethylene polymer of more than 0.930g/cm^3 density, (C) at least

one of rubber-like components selected from styrene-butadiene rubber, styrene-butadiene block copolymer and ethylene-propylene rubber and (D) a talc of more than $30,000\text{cm}^2/\text{g}$ specific surface area in which more than 95wt% of the talc is less than 10μ in particle size, more than 85wt% is less than 5μ , 15W95wt% is less than 1μ wherein the amount of component A is 50W92wt% based on A+B+C, component B is 25W4wt% and component C is 25W4wt%, further component D is 5W50wt% based on A+B+C+D.

COPYRIGHT: (C)1982,JPO&Japio

⑪ 日本国特許庁 (JP)

⑫ 特許出願公開

⑬ 公開特許公報 (A)

昭57—73034

⑭ Int. Cl.³

識別記号

庁内整理番号

⑮ 公開 昭和57年(1982)5月7日

C 08 L 23/10

6609—4 J

C 08 K 3/34

6911—4 J

C 08 L 9/06

6516—4 J

23/06

6609—4 J

23/16

6609—4 J

53/02

7167—4 J

発明の数 1

審査請求 未請求

(全 10 頁)

⑯ タルク含有プロピレン重合体組成物

⑰ 特 願 昭55—149054

⑱ 出 願 昭55(1980)10月24日

⑲ 発 明 者 傍島好洋

四日市市東邦町1番地三菱油化
株式会社樹脂開発研究所内

⑳ 発 明 者 由井浩

四日市市東邦町1番地三菱油化

株式会社樹脂開発研究所内

㉑ 発 明 者 市川幸彦

四日市市東邦町1番地三菱油化
株式会社樹脂研究所内

㉒ 出 願 人 三菱油化株式会社

東京都千代田区丸の内2丁目5
番2号

㉓ 代 理 人 弁理士 古川秀利

明 細 書

1. 発明の名称

タルク含有プロピレン重合体組成物

2. 特許請求の範囲

下記(a)乃至(d)の各成分からなり、(a)、(b)および(c)の配合割合は、(a)+(b)+(c)に対してそれぞれ50～92重量%、25～40重量%および25～40重量%であり、(d)の配合割合は(a)+(b)+(c)+(d)に対して5～50重量%であることを特徴とするタルク含有プロピレン重合体組成物。

(a) 結晶性プロピレン重合体

(b) 密度0.930 g/cm³以上のエチレン重合体

(c) ステレンーブタジエン系ゴム、ステレンーブタジエンブロック共重合体、エチレンープロピレン系ゴムの中から選ばれた少なくとも一種のゴム状成分

(d) 比表面積が30,000 cm²/g以上で、かつ粒子寸法10 μ以下が95重量%以上、5 μ以下が85重量%以上、1 μ以下が15～95重量%であるタルク

(ただし、上記の比表面積は空気透過法により、また粒子寸法は液相沈降方式の光透過法により測定される値を意味する。)

3. 発明の詳細な説明

本発明は、特定の粒度分布を有するタルクをプロピレン重合体樹脂に特定密度のエチレン重合体および特定ゴム状成分と共に配合することによつて得られる、高硬度物性バランス(特に、衝撃強度と剛性のバランス)および良好な成形性・表面特性(特に、耐受傷性と外観)を備えた樹脂組成物に関する。

無機フィラーを熱可塑性樹脂に配合して、その剛性、耐熱性、燃焼性、寸法安定性、難燃性、印刷性、塗装性、接着性等の諸性質を改良することは広く行なわれている。

この方法による改質は、上記諸性質に関しては効果がある反面、衝撃強度レベル、耐受傷性が低く、かつ成形品にシルバーストリーク、フローマーク、シボカシリ等が発生し易く、ウェルド外観も悪化させるといつた欠点を有している。

これらの欠点を改良する方法に関して、衝撃強度の向上については、特定粒径の沈降性炭酸カルシウムを用いる方法（特願昭54-28277明細書）、特定のポリプロピレンに特定の重質炭酸カルシウムを配合する方法（特公昭44-930号公報）、無機フィラー充填エチレン-プロピレン共重合体に更にゴムの性質を有するポリマーを添加する方法（特開昭53-64256、同53-64257号公報）、無機フィラーと樹脂との相容性を改善する方法（特開昭48-97947、同49-34937号公報）等が提案されている。

また、耐受傷性の改良については、特定有機金属化合物を無機フィラーと共にポリオレフィンに配合する方法（特開昭54-43250号公報）、硝子繊維と雲母とを併用する方法（特願昭53-118055明細書）、特定のタルクと特定の炭酸カルシウムを併用する方法（特願昭54-28276明細書）等が提案されており、これらは夫々ある程度の効果を発揮してはいるが、衝撃強度と剛性との物性バランスや耐受傷性、外観等の表

面特性が高レベルであることの要求される工業部品分野に用いられるものとしては品質がなお不充分である。

一方、無機フィラーの中でもタルクは入手が容易であり、取り扱いも簡便で、樹脂中への分散性が良好なことなどの理由から、充填剤として広く用いられており、その組成物に関して多くの品質改良の方法が提案されている。

それらの提案の中でもタルクの粒度分布を調整する方法は注目される。

たとえば、超微粒域のタルクを充填剤として用いる方法（特開昭53-92856、同54-39453号公報）、粒径10 μ 未満でかつアスペクト比6以上のタルクをポリ塩化ビニル系樹脂に配合する方法（特開昭54-107948号公報）、平均粒子径が0.5~10 μ のタルクをポリプロピレンおよび軟質樹脂成分に配合する方法（特開昭53-64257、同55-34271号公報）等が挙げられる。

しかしながら、これらの提案は、あるものはタ

ルクがあまりにも超微粒のみのため斯様なタルクの製造が困難である上に、それを配合した樹脂組成物も成形不良が生じ易く、耐衝撃性や受傷性やシルバーストリーク、フローマーク、シボカシリ、ウェルド外観低下等の外観の悪化抑止性の改良も図り難い。またあるものは微粒域（1 μ 以下）タルクの存在割合の限定がないため、それによる欠点であるシルバーストリークの発生や流動性低下（微粒域が過多の場合）、剛性低下（微粒域が過少の場合）の防止調整がなされない。更に、他のものは第三成分として軟質樹脂成分（ゴム成分）を添加する方法も試みられているが、タルクの粒度分布の検討が不充分であるため特に耐受傷性や外観の点で不満足なものしか得られず、剛性不足などの品質バランスが採れない、等々の欠点を有する。

本発明はこれら従来技術の欠点を解決するものであつて、タルクの粒度分布およびプロピレン系重合体マトリックスの品質に及ぼす影響に着目し検討を行なつた結果、特定の粒度分布を持つタル

クをプロピレン重合体樹脂に特定密度のエチレン重合体および特定ゴム状成分と共に配合することにより高度の物性バランス（特に剛性と衝撃強度のバランス）と良好な成形品表面特性（特に耐受傷性と外観）を有する樹脂組成物が得られることを見い出して本発明に到達したものである。

すなわち、本発明は、下記(a)乃至(d)の各成分からなり、(a)、(b)および(c)の配合割合は、(a)+(b)+(c)に対してそれぞれ50~92重量%、4~25重量%および4~25重量%であり、(d)の配合割合は(a)+(b)+(c)+(d)に対して5~50重量%であることを特徴とするタルク含有プロピレン重合体組成物である。

(a) 結晶性プロピレン重合体

(b) 密度0.930 g/cm^3 以上のエチレン重合体

(c) スチレン-ブタジエン系ゴム、スチレン-ブタジエンブロック共重合体、エチレン-プロピレン系ゴムの中から選ばれた少なくとも一種のゴム状成分

(d) 比表面積が30,000 cm^2/g 以上で、かつ

粒子寸法 10μ 以下が95重量%以上、 5μ 以下が85重量%以上、 1μ 以下が15~95重量%であるタルク

(ただし、上記の比表面積は空気透過法により、また粒子寸法は液相沈降方式の光透過法により測定される値を意味する。)

本発明組成物は上記の点で優れているために、高水準の品質バランスの要求される家電部品や自動車部品等の工業部品分野への樹脂の応用を可能にさせるものである。

次に本発明で用いる各成分について詳述する。

本発明で用いる結晶性プロピレン重合体は、プロピレンの単独重合体(ポリプロピレン)でもよく、また、プロピレンと他の α -オレフィン(例えばエチレン、ブテン、ペンテン、ヘキセン、ヘプテン等)あるいは不飽和有機酸やその無水物(例えばアクリル酸、メタクリル酸、マレイン酸、無水マレイン酸、イタコン酸等)ないしは不飽和エステル(例えば酢酸ビニル、アクリル酸エチル、メタクリル酸メチル等)やビニルシランまたは芳

ポリプロピレン、結晶性プロピレン-エチレンブロックまたはランダム共重合体が好ましい。このプロピレン-エチレン共重合体の場合は、エチレン含量が1~2.5重量%のものが特に好ましい。ここでエチレン含量の測定値は、赤外スペクトル分析とNMRを用いる常法で求められる。

好ましい理由としては、ポリプロピレンでは剛性、耐受傷性、外観、ウエルド強度の点で、またプロピレン-エチレン共重合体では耐衝撃性、耐受傷性、外観の点で特に好ましい結果が得られることを挙げることができる。

次に、本発明で用いるエチレン重合体は、密度が $0.930g/cm^3$ 以上のものであり、種類としては、エチレンの単独重合体(ポリエチレン)、エチレンと他の α -オレフィン(例えばプロピレン、ブテン、ペンテン、ヘキセン、ヘプテン等)あるいは不飽和有機酸やその無水物(例えばアクリル酸、メタクリル酸、マレイン酸、無水マレイン酸、イタコン酸等)ないしは不飽和エステル(例えば酢酸ビニル、アクリル酸メチル、メタクリル

香族ビニル化合物等のいわゆるビニルモノマーとの二元以上のブロック、ランダムないしグラフト共重合体でもよい。更には、これらの重合体の混合物でも一向に差し支えない。

上記のプロピレンと他のビニルモノマーとの共重合体の場合は、プロピレンが重量で少なくとも過半数以上を占めている必要がある。

このようなプロピレン重合体は結晶性である必要があり、そのアイソタクチックインデックス(II)は一般に40以上であり、好ましくは60以上のものが良い。IIが40未満のものは、剛性、硬度等が不足し不適當である。

また、これらのプロピレン重合体のMFR(JIS-K6758、2.16kg荷重)は $0.01\sim150g/10分$ であり、特に $0.1\sim80g/10分$ のものが好ましい。

MFRが $0.01g/10分$ 未満のものは、成形性、外観等が良くなく、 $150g/10分$ 超過のものは耐衝撃性が劣り不適當である。

このような結晶性プロピレン重合体の中でも、

酸メチル等)やビニルシランまたは芳香族ビニル化合物等のいわゆるビニルモノマーとの二元以上のブロック、ランダムないしグラフト共重合体等を挙げることができる。また、これらの重合体の混合物でも一向に差し支えない。

上記のエチレンと他のビニルモノマーとの共重合体の場合は、エチレンが重量で少なくとも過半数以上を占めている必要がある。

これらのエチレン重合体のMFR(JIS-K6760、2.16kg荷重)は $0.01\sim100g/10分$ であり、特に $0.1\sim30g/10分$ のものが好ましい。

また、これらのエチレン重合体のうち、密度 $0.930\sim0.965g/cm^3$ のものが好ましく、 $0.930g/cm^3$ 未満のものは剛性、ウエルド強度の点で好ましくない。

これらのエチレン重合体の中でも特にポリエチレンが好ましい。

このようなエチレン重合体は、耐衝撃性の向上に有効であるが、従来のタルク含有オレフィン重

合体組成物において顕著であつた耐受傷性の不良およびシボカジリによる外観の不良といった欠点に対する改良向上にも特に際立つた効果を示す。然も、本効果は適度な物性バランス特に剛性と衝撃強度を良好な水準に保持し乍ら発現されるもので本発明で初めて実現し得たものである。

次に、本発明で用いるゴム状成分は、スチレン-ブタジエン系ゴム（以下SBRと記す）、スチレン-ブタジエンブロック共重合体（以下SBBと記す）、エチレン-プロピレン系ゴム（以下EPRと記す）の中から選ばれた少なくとも一種のものである。

これらゴム状成分の性状は限定されるものではないが、SBRはJIS-K6300に基ずくムーニー粘度 $ML_{1+4}(100^\circ C)$ 20~80のものが好ましく、中でも35~60のものが特に良い。同時に結合スチレン含量（重量）は15~60%のものが好ましく、特に20~50%のものが良い。

また、SBBは共役ジオレフィンと芳香族ビニ

好ましくは20~45%、ムーニー粘度 $ML_{1+4}(100^\circ C)$ が20~120、好ましくは60~110、更にEPDMでは沃素価が20以下のものが適当である。

これらのゴム状成分は2種以上を併用しても差し支えない。

一方、本発明で用いるタルクは、比表面積が30,000 cm^2/g 以上で、かつ粒径10 μ 以下のものが95重量%以上、5 μ 以下のものが85重量%以上で、かつ1 μ 以下のものが15~95重量%の粒度分布を有するものである。これらの内、比表面積が38,000 cm^2/g 以上のものが好ましい。

また、好ましい粒径または粒度分布については、粒径の上限が実質的に15 μ 以下のものが好ましく、特に好ましくは実質的に粒径15 μ 以下で、10 μ 以下が97重量%以上、5 μ 以下が87重量%以上、かつ1 μ 以下が15~95重量%のものである。

粒径10 μ 以下が95重量%未満、5 μ 以下が

ル化合物よりなり、一般式が次式で表わされる共重合体である。

$(A-B)_{n+1}$ または $B-(A-B)_{n+1}$ または $A-(B-A)_n$
ここにAは芳香族ビニル化合物より成る重合体ブロック、Bは共役ジオレフィン重合体ブロック、nは1~20の整数、Aブロックの全体の分子に占める割合は1~50重量%である。この共重合体の平均分子量は10,000~1,000,000、好ましくは50,000~250,000である。共役ジオレフィンとしては、1,3ブタジエン、イソプレン、n-1,3ペンタジエン等が使用される。さらに芳香族ビニル化合物としては、スチレン、メチルスチレン、ジメチルスチレン等が使用される。尚、共役ジオレフィン重合体ブロックを水添したスチレン-ブタジエンブロック共重合体についても本発明の効果を発揮する。

また、EPRはエチレン-プロピレン二元共重合体ゴム（EPM）またはエチレン-プロピレン-非共役ジエン三元共重合体ゴム（EPDM）であつて、プロピレン含量（重量）が25~60%、

85重量%未満のタルクでは、本発明で用いる結晶性プロピレン重合体、エチレン重合体およびゴム状成分にこれを充填した組成物の耐衝撃性、耐受傷性が劣り、好ましくない。

また、粒径1 μ 以下が15重量%未満のものである、組成物の剛性、耐受傷性が劣り、一方1 μ 以下が95重量%超過のものでは、組成物の成形時にシルバーストリークが発生し易く、流動性も劣り好ましくない。

ここで、比表面積の測定は、常法である、いわゆる空気透過法に基ずいて恒圧通気式比表面積測定装置、例えば島津製作所製粉体比表面積測定装置SS-100型等で行なう。

また、粒度分布の測定は、液相沈降方式の光透過法による積算重量分布値である。測定装置としては、例として島津製作所製CP型（たとえばCP-5.0）あるいはセイシン企業製SKN型（たとえばSKN-1000型）がある。

装置の相異により測定値に違いが生ずることは一般に起こることであるが、上記CP型での値は

特に5 μ 以下の粒径のタルクにおいて、SKN型での値より低い分布値(重量%)を示す傾向にあり、本発明では、CP型による方がより当を得ている。

また、樹脂中に分散しているタルクの粒径分布は、この組成物を有機溶媒で沸点抽出する方法(たとえばキシレン中130 $^{\circ}$ ~140 $^{\circ}$ Cで10時間程浸漬溶解せしめ、それを円筒ろ紙を通過せしめてタルクと樹脂を分離する方法)またはこの組成物を焼成する方法等で取り出したタルクの粒径分布を前記方法で測定することにより求めることができる。

また、このタルクの縦または横のいずれかの長さとの比を示すアスペクト比の平均値は3以上が好ましく、特に4以上が良い。

また、このタルクの平均粒径(先述の島津製作所製CP型またはセイシン企業製SKN型装置で測定した粒径の累積分布曲線における50%の点の粒径値)が0.2~3.0 μ のものが好ましい。0.2 μ 未満のものを用いると外観、特にシルバ

ーストリークが発生し易く、3.0 μ 超過のものを用いると耐受傷性の点で好ましくない。平均粒径1.5 μ 以下のタルクは湿式分級で得られ易く、同0.7 μ 以上のタルクは乾式分級で得られ易い。

斯様なタルクは、たとえば次のような分級方法によつて製造される。すなわち、タルク原石をチューブミル型粉砕機、衝撃式粉砕機、ミクロンミル型粉砕機、遠心ローラー型レイモンドミル等の装置で粉砕し、微粉砕を要する場合には更に、ミクロンミル、ジェット型粉砕機、ジェット・オ・マイザー、ミクロナイザー、ジェットバルベライザー、攪拌摩砕ミル(タワーミル)、振動ミル、コロイドミル等で乾式または湿式微粉砕する。

次に、これらの粉砕したタルクをサイクロン、マルチロン、ミクロンセパレーター、ミクロブレッツクス、サイクロンエアセパレーター、ウルトラセパレーター、ジェットクロン、クランクロンレーキ分級機、ハイドロサイクロン、水力分級機、遠心分級機、等の装置で、一回又は複数回繰り返して乾式または湿式分級し、その分布を調整する。

これらの内、ハイドロサイクロン、水力分級機、ミクロンミル、ミクロンセパレーター、サイクロン等の装置を用いると好結果が得られる場合が多い。

なお、このタルクは表面処理されていてもよく、また処理されていなくともよい。

表面処理としては、たとえばシランカップリング剤系、高級脂肪醇系、脂肪酸金属塩系、不飽和有機酸またはその誘導体系(無水マレイン酸系、アクリル酸系等)、有機チタネート系、樹脂酸系等の各種処理剤での化学的または物理的表面処理を挙げることができる。

表面処理は、本発明の効果の他、ウエルド強固、塗装性、接着性、タッピング性、成形加工性、混練性等の改良に有効である。

本発明で用いるこれら4種類の各成分の配合割合は、結晶性プロピレン重合体を(a)、密度0.930 g/cm^3 以上のエチレン重合体を(b)、ゴム状成分を(c)およびタルクを(d)とすれば、(a)、(b)および(c)については(a)+(b)+(c)に対してそれぞれ、

(a): 5.0~9.2重量%、好ましくは5.6~8.4重量%

(b): 2.5~4重量%、好ましくは2.2~3.8重量%

(c): 2.5~4重量%、好ましくは2.2~3.8重量%

であり、(d)については(a)+(b)+(c)+(d)に対して5~50重量%、好ましくは5~40重量%である。

(a)成分が5.0重量%未満では、剛性、外観、成形性が不良となり、9.2重量%超過では、耐衝撃性が劣る。

(b)成分が4重量%未満では、耐衝撃性、耐受傷性、外観が不良であり、2.5重量%超過では、剛性が不良となる。

(c)成分が4重量%未満では、耐衝撃性、耐受傷性、外観が不良であり、2.5重量%超過では、剛性が不足する。

(d)成分が5重量%未満では、剛性が不足し、成形品のヒケや変形が目立つようになり、50重量%超過では、耐衝撃性、耐受傷性、外観が悪化する。

る他、成形時の充填不足が発生し易くなる。

本発明組成物は、上記各成分の他に、本発明の効果を著しく損わない範囲で、他の付加的成分を添加することができる。


それらの付加的成分としては、表面処理を施したかまたは無処理のタルク以外の無機または有機ファイラー（たとえば炭酸カルシウム（重質、軽質、膠質等）、マイカ、ガラス繊維、硫酸バリウム、けい酸カルシウム、クレー、炭酸マグネシウム、アルミナ、シリカ、酸化鉄、硫酸カルジウム、ガラスビーズ、ガラス粉末、ホワイトカーボン、中空ガラス球、けい砂、けい石、カーボンブラック、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、酸化亜鉛、塩基性炭酸マグネシウム、アスベスト、ゼオライト、白鴉蓼、モリブデン、酸化チタン、けいそう土、セリサイト、シラス、黒鉛、水酸化カルシウム、亜硫酸カルシウム、石膏繊維、炭素繊維、合成ケイ酸系ファイバー（PMF、プロセスドミネラルファイバー）、石英粉、ベントナイト、金属ホイスカー、木粉、硫酸ソーダ）、本発明で

剤等を挙げることができる。

これらの各種樹脂、助剤の添加は、物性バランスや成形品表面特性（耐受傷性、光沢、ウェルド外観、シルバーストリーク、フローマーク等）の他に、印刷性、塗装性、接着性、メツキ性、タツピング性、成形加工性、混練性、ウェルド強度、耐久性、耐熱性、耐候性等の向上に有効である。

これらの付加的成分は、併用して添加することもできる。

なお、付加的成分としての無機ファイラーの添加は、本発明の効果に寄与する他、メツキ性、塗装性、接着性、光沢、成形性、タツピング性、混練性、ウェルド強度、耐クリープ性、寸法安定性、耐熱性等の向上に有効である。なお平均粒径0.05~1 μ 程度の微粒炭酸カルシウム（膠質、重質）、硫酸バリウム、酸化チタン、酸化亜鉛の添加は、これらの効果の向上が顕著である。特に比表面積が16,000 cm^2/g 以上でかつ平均粒径が0.16~1.0 μ の沈降性膠質のない湿式粉砕の重質の炭酸カルシウムを上記(a)乃至(d)成分

用いる以外のゴムまたはラテックス成分（たとえばポリブタジエン、ポリイソプレン、1,2-ポリブタジエン、ブチルゴム、ニトリル-ブタジエンゴム、ポリイソブチレン等）、本発明で用いる上記樹脂成分以外の熱可塑性樹脂または熱硬化性樹脂（たとえば、高、中あるいは低密度ポリエチレン、ポリブテン等の α -オレフィンの単独重合体、 α -オレフィン同志の共重合体、 α -オレフィンとビニルモノマーとの共重合体等のオレフィン重合体樹脂、並びにナイロン、ポリカーボネート、アクリロニトリル-ブタジエンスチレン樹脂（ABS）、ポリスチレン、ポリ塩化ビニル、ポリスエニレンオキサイド、石油樹脂、フェノール樹脂等のオレフィン重合体樹脂以外の樹脂）、酸化防止剤（フェノール系、イオウ系等）、滑剤、有機・無機系の各種顔料、紫外線吸収剤、帯電防止剤、分散剤、銅害防止剤、中和剤、発泡剤、可塑剤、気泡防止剤、難燃剤、架橋剤、流れ性改良剤、（例えば各種過酸化物）、ウェルド強度改良剤（例えば各種過酸化物）、核

の合計100重量部当り5~7.0重量部添加すると物性バランス、表面特性及び塗装性を中心とした二次加工性を飛躍的に向上させる。

本発明組成物は、一軸押出機、二軸押出機、バンバリーミキサー、ローラー、ブラベンダー、ブラストグラフ、ニーダー等の通常の混練機を用いて製造することができる。通常は押出機等で混練してペレット状のコンパウンドにした後、加工に供するが、特殊な場合は、タルクとプロピレン重合体、エチレン重合体、ゴム状成分とを直接各種成形機に供給し、成形機で混練しながら成形することもできる。又、予めタルクを（必要に応じて各種添加剤と）高濃度に混練してマスターバッチとし、それを別途プロピレン重合体等またはタルク含有プロピレン重合体等で希釈しながらブレンドコンパウンディングしたり、成形したりすることもできる。

本発明組成物の成形加工法は特に限定されるものではないが、比較的MFRの低いものは押出成形して各種熱成形する方法が、また比較的MFR

が高いものは射出成形に適する。すなわち、押出成形、中空成形、射出成形、シート成形、熱成形、回転成形、積層成形等成形法の違いを問わず、成形品において本発明効果は発現される。

斯様にして得られた本発明組成物は、従来のタルク含有プロピレン重合体組成物には無い、高度な物性バランス（衝撃強度—剛性）と良好な成形品表面特性（耐受傷性、外観）が認められる他、耐熱変形性、成形加工性、印刷性、塗装性、メッキ性、タッピング性、耐クリープ性が良好でヒケ、反りも目立たず、ウェルドラインも目立ちにくい。

以下に実施例を示して本発明をより具体的に説明する。

ここで用いる各種測定法は次の通りである。

① 衝撃強度

④ 面衝撃強度（デュボン衝撃強度）

3.5mm×50mm×2mmのシートを用い、JIS-K5400の6-13項の2、B法（参考試験）に示される装置を使用し、ダート及び受け板の曲率部の直径は1/2インチの条件で実験を行ない、

50%破壊時の落下エネルギーをもつて衝撃強度値とした（測定温度23℃）。

⑤ 曲げ衝撃強度（ノッチ付アイゾット衝撃強度）

JIS-K7110に準拠（測定温度23℃）

⑥ 剛性（三点曲げ弾性率）

JIS-K7203に準拠（測定温度23℃）。

⑦ 耐受傷性

JIS-K5401に示される鉛筆引掻試験装置を改良して、鉛筆セット部に百円硬貨をセットし、その側面凹凸部で2500gの荷重を加えながら3.5mm×50mm×2mmの試験片である粗シボ（凸部高さ平均0.1mm、凸部面積平均4mm²）シート上を擦過せしめ、その跡を目視で次の様に判定した（測定温度23℃）。

目視結果

判定

キズ跡が全く認められない	1級
キズ跡が殆んど認められない	2級
キズ跡が若干認められる	3級
キズ跡が認められる	4級

⑧ 外観

前④項で用いる粗シボシート上のシルバーストリーク、フローマーク、シボガジリ等（以下欠点と称す）の発生状況およびウェルドラインを目視で観察。

目視結果

判定

欠点が全く認められず、ウェルドラインも目立ち難く極めて良好

1級

欠点が殆んど認められず、ウェルドラインも目立ち難く良好

2級

欠点が若干認められ、ウェルドラインも目立ち、不良

3級

欠点が認められ、ウェルドラインが目立ち、極めて不良

4級

実施例 1

中国産タルクをミクロンミルにて充分粉碎し、更にこれをミクロンセパレータで分級処理した。然る後、サイクロンを用いて乾式精密分級を行ない、第1表第1及び第2に示す比表面積および粒

度分布を有するタルクを得た。

このタルクの平均粒径および平均アスペクト比を測定したところ、それぞれ1.4μ、2.3μおよび6.5であつた。

又、1.5μ以上の粗粒分は前者では認められず、後者では0.1重量%認められた。又、ミクロンミルで粉碎後、コロイドミルで湿式粉碎を行ない、然る後、ハイドロサイクロンを用いて湿式精密分級を行ない、第1表第1.0に示す比表面積および粒度分布を有するタルクを得た。このタルクの平均粒径は0.6μで平均アスペクト比は7であつた。尚、1.5μ以上の粗粒分は認められなかつた。これらのタルクと、ゴム成分としてのEPM（三菱油化社販売EP0.7P：プロピレン含量28重量%、ムーニー粘度ML1+4（100℃）75）、EPDM（三菱油化社販売EP27：プロピレン含量43重量%、ムーニー粘度ML1+4（100℃）43、沃素価15）、SBB（シェル化学社製カリフレックスTR110.2：前述の一般式でA-(B-A)1の構造を有するステレン-1、

比較例 1

実施例1で用いたタルクを製造する際の粉砕機、分級機の工程、条件を一部変更又は省略（ミクロンセパレータの回転数を低減化、サイクロン分級省略、サイクロン回転数高速化）して第2表第22、第23、第24に示す比表面積および粒度分布を有するタルクを得た。このタルクの平均粒径および平均アスペクト比はそれぞれ3.9 μ 、8.5 μ 、0.16 μ および5.4、7であり、15 μ 以上の粗粒分はそれぞれ7、25、0重量多であつた。

このタルクまたは実施例1第1で用いたタルクと、実施例1で用いたのと同じのEPM、ポリエチレンEY40、ポリプロピレンMH4および顔料の他、密度0.924 g/cm^3 のポリエチレン（三菱油化社製YK50：MFR4 $g/10分$ ）を用いて、実施例1と同様の手法で混合、混練、調整評価した。

結果を第2表第15～25に示す。何れも品質粗バランスが不良であつた。即ち、従来の粗粒分の

多い、又は特定分布以外のタルクを用いると、衝撃強度が低レベルであるとともに耐受傷性、外観が極端に悪く、微粒分が多いとシルバーストリークが発生し、2次篩弊の影響で物性が低下する。

又、ゴム状成分を用いないか、用いても過少のものは衝撃強度が著しく低く、特に後者は外観（フローマーク）が悪化する。又、ゴム状成分過多になれば、剛性が低下し耐受傷性、外観が悪化する。

エチレン重合体を用いないもの、もしくは用いても過少のものは、衝撃強度が低レベルであるとともに、特に耐受傷性が著しく悪化し、又、シボカズリが発生する。又、密度が0.930 g/cm^3 未満のいわゆる低密度エチレン重合体を用いた場合には、剛性が低下すると共に耐受傷性、外観も低下し、又、ウェルド強度が不良となる。ゴム状成分、エチレン重合体双方共用いないものは、極端に衝撃強度が低下し、外観も悪化する。

第 2 表 (比較例 1)

No.	組 成						成					評 価				
	配 合 量 重量% (対(a)+(b)+(c))						タルク配合量 重量% (対組成物全量)					物 性 バ ラ ン ス			表 面 特 性	
	プロピレン		エチレン		ゴ ム 状		比 表 面 積 cm ² /g	粒度分布 重量%			衝撃強度 デュボン kg・cm	三点曲げ アイゾット kg・cm/cm	弾 性 率 kg/cm ²	耐受傷性 級	外 観 級	
	種 類	重合体 (a)	密 度 g/cm ³	重合体 (b)	種 類	成分 (c)		1μ 以下	5μ 以下	10μ 以下						
15	PP	100	—	—	—	—	47,100	33	94	98	30	5	3	35,100	1~2	3
16	"	90	0.950	10	—	—	"	"	"	"	"	10	5	32,800	1	1
17	"	"	—	—	EPM	10	"	"	"	"	"	40	8	30,800	3	2
18	"	80	0.950	10	"	"	"	"	"	"	3	>400	>42	12,700	1	1 ^①
19	"	"	"	"	"	"	"	"	"	"	55	8	5	58,000	4	4
20	"	67	"	30	"	3	"	"	"	"	30	18	6	30,500	1	3
21	"	"	"	3	"	30	"	"	"	"	"	165	19	18,800	3	"
22	"	80	"	10	"	10	32,100	11	55	78	"	36	8	30,300	4	"
23	"	"	"	"	"	"	16,400	6	33	65	"	30	7	29,600	"	4
24	"	"	"	"	"	"	*78,000	98	99	100	"	88	13	31,500	2	" ^②
25	"	"	0.924	"	"	"	47,100	33	94	98	"	86	13	27,800	3	2 ^③

表中、PPはポリプロピレン、EPMはエチレン-プロピレン共重合体ゴムを示す。

*湿式分級タルク

①ヒケ、反り顕著

②流動性も不良

③ウェルド強度不良

実施例 Ⅱ

実施例Ⅰ及びⅠ０と同一の組成物（ペレット状コンパウンド）を三菱ナトコ800EXL型スクリーインライン射出成形機を用い、幅300mm×長さ600mm×肉厚3mmのインストルメントパネル、コシソール、トリム等の大型自動車部品、クーラー、テレビ等の家電部品等を想定したモデル成形平板（粗シボ付）を成形した。この際成形性、流動性は良好であつた。得られた成形平板は自動車部品、家電部品等に対して実用充分な衝撃強度（低温衝撃も含む）、剛性、耐受傷性、ウエルド強度を有し、フローマーク、シルバーストリーク、シボカジリも認められず、光沢も優れ、ウエルドラインも目立ちにくく、ヒケや反りも目立たず、良好な外観を示し、又、耐熱変形性、耐クリープ性、印刷性、塗装性、メッキ性、タッピング性等も良好であつた。

三菱油化株式会社

代理人 弁理士 古川 秀利

代理人 弁理士 長谷 正久